

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problems Mailbox.**

THIS PAGE BLANK (USPTO)

PCTWELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM
Internationales BüroINTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)(51) Internationale Patentklassifikation ⁵ :

H01M 8/24

A1

(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 94/25995

(43) Internationales
Veröffentlichungsdatum:

10. November 1994 (10.11.94)

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/DE94/00458

(22) Internationales Anmeldedatum: 22. April 1994 (22.04.94)

(30) Prioritätsdaten:

P 43 14 745.3

4. Mai 1993 (04.05.93)

DE

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US):
FRAUNHOFER-GESELLSCHAFT ZUR FÖRDERUNG
DER ANGEWANDTEN FORSCHUNG E.V. [DE/DE];
Leonrodstrasse 54, D-80636 München (DE).

(72) Erfinder; und

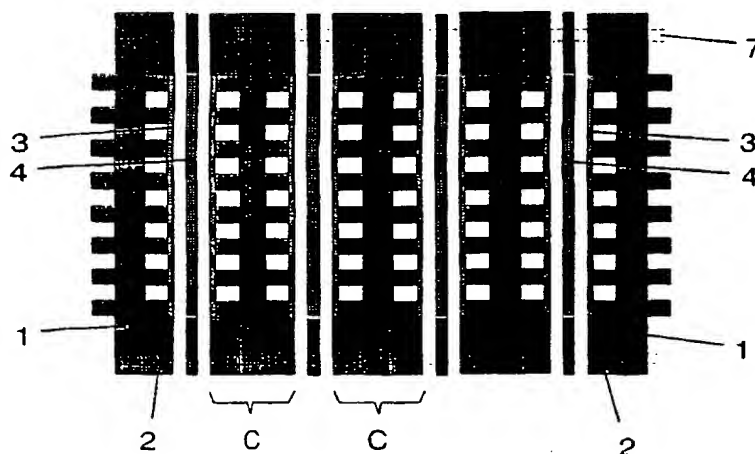
(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): LEDJEFF, Konstantin
[DE/DE]; Kleinbühlweg 6, D-79189 Bad Krozingen (DE).
NOLTE, Roland [DE/DE]; Schwabenstrasse 28, D-79211
Denzlingen (DE).(74) Anwalt: PFENNING-MEINIG-BUTENSCHÖN-
BERGMANN-NÖTH-REITZLE-KRAUS; Mozartstrasse
17, D-80336 München (DE).(81) Bestimmungsstaaten: JP, US, europäisches Patent (AT, BE,
CH, DE, DK, ES, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT,
SE).

Veröffentlicht

Mit internationalem Recherchenbericht.

(54) Title: POLYMER FUEL CELL

(54) Bezeichnung: POLYMER-BRENNSTOFFZELLE



(57) Abstract

A fuel cell has current conductors, solid polymer electrolytes shaped as membranes, gas distributing rings and current distributors. All these components are made of a solvent-soluble thermoplastic base polymer. This base polymer is modified in each individual component, so that the current conductors (1) are electroconductive, the membranes (4) are ion conductive, the current distributors (3) are gas-permeable and electroconductive and the gas distributing rings (2) are made of non-modified and/or electroconductive base polymer. The components are assembled without seals by a joining process.

(57) Zusammenfassung

Die Erfindung betrifft eine Brennstoffzelle mit Stromableiter, polymeren Festelektrolyten in Form von Membranen, Gasverteillerringen und Stromverteiler als Bauteile, wobei alle Bauteile aus einem thermoplastischen, in einem Lösungsmittel löslichen, Grundpolymer gefertigt sind und daß dieses Grundpolymer für die einzelnen Bauteile so modifiziert ist, daß die Stromableiter (1) elektrisch leitfähig, die Membrane (4) ionenleitfähig, die Stromverteiler (3) gasdurchlässig und elektrisch leitfähig und die Gasverteillerringe (2) aus nichtmodifiziertem und/oder elektrisch leitfähigem Grundpolymer sind, und daß die Bauteile ohne Dichtungen durch ein Verbundverfahren zusammengefügt sind.

LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AT	Österreich	GA	Gabon	MR	Mauretanien
AU	Australien	GB	Vereinigtes Königreich	MW	Malawi
BB	Barbados	GE	Georgien	NE	Niger
BE	Belgien	GN	Guinea	NL	Niederlande
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland	NO	Norwegen
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	NZ	Neuseeland
BJ	Benin	IE	Irland	PL	Polen
BR	Brasilien	IT	Italien	PT	Portugal
BY	Belarus	JP	Japan	RO	Rumänien
CA	Kanada	KE	Kenya	RU	Russische Föderation
CF	Zentrale Afrikanische Republik	KG	Kirgisistan	SD	Sudan
CG	Kongo	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	SE	Schweden
CH	Schweiz	KR	Republik Korea	SI	Slowenien
CI	Côte d'Ivoire	KZ	Kasachstan	SK	Slowakei
CM	Kamerun	LI	Liechtenstein	SN	Senegal
CN	China	LK	Sri Lanka	TD	Tschad
CS	Tschechoslowakei	LU	Luxemburg	TG	Togo
CZ	Tschechische Republik	LV	Lettland	TJ	Tadschikistan
DE	Deutschland	MC	Monaco	TT	Trinidad und Tobago
DK	Dänemark	MD	Republik Moldau	UA	Ukraine
ES	Spanien	MG	Madagaskar	US	Vereinigte Staaten von Amerika
FI	Finnland	ML	Mali	UZ	Usbekistan
FR	Frankreich	MN	Mongolei	VN	Vietnam

Polymer-Brennstoffzelle

5

Die Erfindung betrifft Brennstoffzellen, deren Einzelkomponenten (Bauteile) Stromableiter, polymeren Festelektrolyten in Form von Membranen, Gasverteiler-ring und Stromverteiler aus ein und demselben Grundpolymer gefertigt sind, wobei einzelne Bauteile durch ein Verbundverfahren zusammengefügt sind.

10

15

20

Brennstoffzellen werden entweder als separate Einzelzelle oder als sogenannte Brennstoffzellenstack aufgebaut. Bei der Stackbauweise werden eine gewisse Anzahl von Einzelzellen hintereinandergeschaltet, um eine entsprechend höhere Ausgangsspannung zu realisieren. Die am meisten eingesetzte Brennstoffzelle, eine Wasserstoff-/Sauerstoff-Brennstoffzelle ist dabei hauptsächlich aus folgenden Einzelbauteilen aufgebaut: einem Stromableiter, einem Wasserstoff-Gas-

verteilerring, einem Ionenaustauschermembran, Strom-
verteilerstrukturen und Sauerstoff-Gasverteilerringe.
Im Falle von Einzelzellen werden als Stromableiter
positive bzw. negative Platten verwendet, im Falle
5 von Brennstoffzellenstacks werden als Stromableiter
bipolare Platten eingesetzt, die zu einem entspre-
chenden Brennstoffzellenstack aufgebaut werden. Im
Stand der Technik werden bisher die einzelnen Bautei-
le über Dichtungsringe miteinander verbunden.

10

Diese Verfahrensweise besitzt jedoch erhebliche Nach-
teile. Die Verwendung von Dichtungsmaterialien ist
generell nicht unkritisch. Das Material muß nämlich
neben den geforderten Dichtungseigenschaften reinen
15 und feuchten Sauerstoff und Wasserstoff bei erhöhter
Temperatur (ca. 80°C) in Dauerbelastung widerstehen,
ohne daß eine Versprödung bzw. Degradation eintritt.
Die Verwendung von Materialien mit Zusatzstoffen,
bzw. Weichmachern, die dafür vorgeschlagen wird, hat
20 dann aber zur Folge, daß diese Stoffe im Laufe der
Zeit ausdiffundieren, sich anderweitig ablagern oder
den Katalysator vergiften, was zum Ausfall des
Systems führen kann. Materialien ohne Zusatzstoffe
erfordern häufig einen hohen Anpreßdruck, um die
25 Dichtwirkung zu gewährleisten. Dies wiederum erfor-
dert mechanisch extrem stabile Membrane, die diesen
Belastungen standhalten können. Dünne Membranen, de-
ren Einsatz aufgrund ihrer sehr guten Ionenleitfähig-
keit wünschenswert ist, sind mit den herkömmlichen
30 Techniken des Standes der Technik nicht möglich.

Vor allem bei Brennstoffzellenstacks wirft die Ver-
wendung von Dichtungsmaterialien noch weitere Proble-
me auf. Bedingt durch die mechanische Deformierbar-

keit des Dichtungsmaterials kommt es zu einer Veränderung der geometrischen Lage der Einzelkomponenten zueinander. Insbesondere ist bei der zwischen zwei Dichtungsringen eingeklemmten Ionenaustauschermembran die Bildung von Knicken im Membranmaterial möglich, die während des Betriebs potentielle Bruchstellen darstellen. Bei Materialversagen kann es dann zum direkten Kontakt Wasserstoff/Sauerstoff kommen, was den Ausfall der Zelle mit sich zieht.

Ausgehend von diesem Stand der Technik ist es die Aufgabe der vorliegenden Erfindung, eine Brennstoffzelle bzw. einen Brennstoffzellenstack vorzuschlagen, bei dem die Verwendung von Dichtungsmaterial zwischen den einzelnen Bauteilen minimiert bzw. ganz vermieden wird.

Die Lösung dieser Aufgabe erfolgt durch die kennzeichnenden Merkmale des Anspruchs 1. Die Unteransprüche 2 bis 14 zeigen vorteilhafte Weiterbildungen auf.

Durch die erfindungsgemäße Lösung, nämlich die Herstellung aller Bauteile aus ein und demselben Grundpolymer, bzw. einer modifizierten Form davon für die einzelnen Bauteile, wird nun erreicht, daß die einzelnen Bauteile untereinander durch ein Verbundverfahren zusammengefügt werden können und dadurch Dichtungsmaterial minimiert bzw. ganz vermieden wird.

Entscheidende Bedeutung kommt dabei dem für die Herstellung der einzelnen Bauteile vorgesehenen thermoplastischen Polymer zu.

Als thermoplastisches Polymer sind dabei nur solche geeignet, die den spezifischen Anforderungen in einer Wasserstoff-/Sauerstoff-Brennstoffzelle hinsichtlich der mechanischen und chemischen Forderungen genügen.

5

Das vorgesehene thermoplastische Polymer muß dabei als Konstruktionswerkstoff für tragende Teile des Brennstoffzellenaufbaus geeignet sein, d.h. insbesondere Formstabilität unter Druck und bei erhöhten Temperaturen aufweisen. Das Material darf weiterhin chemisch durch trocknen und feuchten Wasserstoff bzw. Sauerstoff nicht angegriffen werden und muß zusätzlich hydrolysestabil sein.

10

15

Weiter ist gefordert, daß das thermoplastische Material, unter Beibehaltung aller vorgenannter Eigenschaften, bis mindestens 80° stabil bleibt.

20

Diese Eigenschaften allein sind notwendig, aber für das erfindungsgemäße Konzept der Polymerbrennstoffzelle nicht ausreichend. Es muß weiterhin möglich sein, das Material so zu modifizieren, daß bestimmte, für die jeweiligen Einzelbauteile notwendigen physikalischen oder chemischen Eigenschaften realisiert werden können. Für die Stromableiter, d.h. für die positiven und negativen Platten bzw. die bipolaren Platten, wie auch für die Stromverteilerstrukturen muß es möglich sein, das polymere Grundmaterial elektrisch leitfähig zu machen. Für die Ionenaustauschermembran muß es möglich sein, dasselbe Material ionisch leitfähig zu realisieren.

25

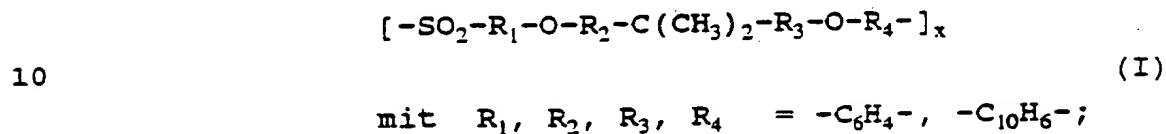
30

Erfindungsgemäß werden bevorzugt als polymere Grundmaterialien solche thermoplastischen Polymere vorge-

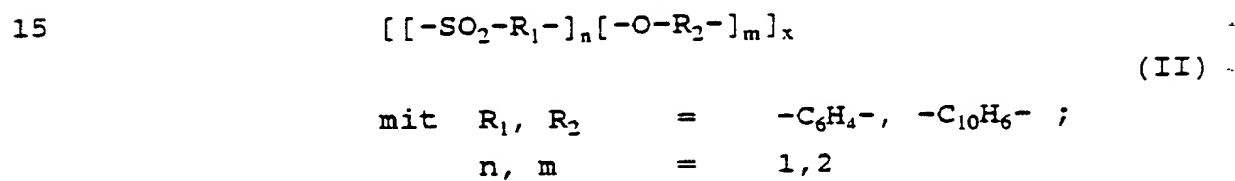
schlagen, die ein "aromatisches Rückgrat" besitzen und in geeigneten Lösungsmitteln löslich sind. Der Polymerisationsgrad des Grundpolymers muß danach ausgewählt werden.

5 Solche Polymere sind:

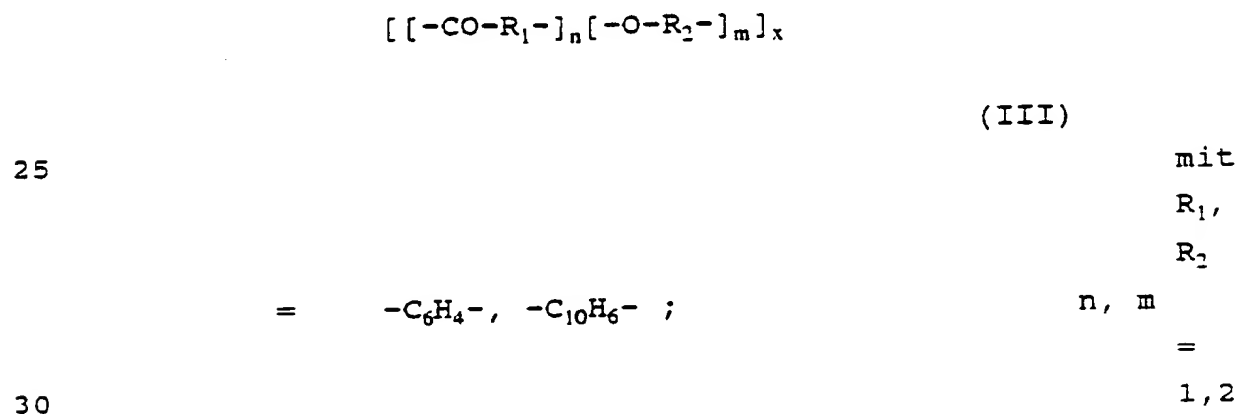
Polysulfone (I)



Polyethersulfone (II)

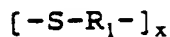


20 Polyetherketone (III)



30

Polyphenylensulfide (IV)



(IV)

mit $R_1 = -C_6H_4-$

5 wobei x in weiten Grenzen variieren kann, jedoch gefordert ist, daß das Polymer in einem geeigneten Lösungsmittel löslich ist. X liegt bevorzugt deshalb zwischen 5 und 10.000 je nach Polymer und Lösungsmittel.

10 Erfindungsgemäß ist es aber auch möglich, daß Copolymere der vorstehend beschriebenen Monomeren eingesetzt werden.

15 Besonders bevorzugt ist die Verwendung von Polyethersulfon (PES). PES zeichnet sich durch hohe Zugfestigkeit, Schlagzähigkeit, Wärmeform- und Chemikalienbeständigkeit aus, und verhält sich gleichzeitig flammwidrig und ist selbstverlöschend. Deshalb ist PES als thermoplastisches Polymer für die erfindungsgemäße
20 Verwendung besonders geeignet.

PES besitzt zudem keine aliphatischen CH-Bindungen, sondern nur aromatische CH-Bindungen. Aufgrund der höheren Bindungsenergie aromatischer CH-Bindungen
25 gegenüber aliphatischen, sind solche Substanzen wesentlich stabiler gegenüber einer radikalisch verlaufenden Oxidation durch Sauerstoff und besitzen so die Stabilitätsvoraussetzungen für den Einsatz in sauerstoffhaltiger Umgebung in der Brennstoffzelle. PES
30 besitzt zudem keine leicht hydrolysierbaren funktionellen Gruppen, wie z.B. Estergruppierungen, sondern nur sehr schwer angreifbare Sulfon- oder Ethergruppen und verhält sich damit sehr stabil gegenüber Hydrolysereaktionen. Vorteilhaft ist bei PES weiterhin, daß

aufgrund der Tatsache, daß PES durch Spritzgießen oder Extrusion verarbeitet werden kann, es auch möglich ist, einzelne Bauteile untereinander aus PES durch Kunststoffschweißen oder Verklebung miteinander zu verbinden. Zusätzlich können durch Einarbeitung leitfähiger Partikel als Modifizierungstechnik elektronisch leitfähige Kunststoffe hergestellt werden. Die aromatischen Ringe in Polymerrückgrat bieten die Möglichkeit, auf chemischem Weg ionische Gruppierungen einzuführen, um so ionenleitfähige Kunststoffe herzustellen. PES besitzt somit sämtliche relevanten Eigenschaften, die bei der Verwendung als Basismaterial für die Polymer-Brennstoffzellen erforderlich sind.

Mit diesem Grundpolymer, bzw. mit dessen modifizierten Formen, können dann die einzelnen Bauteile gefertigt werden.

Zur Herstellung der Stromableiter, d.h. der positiven und negativen Platten, bzw. der bipolaren Platten muß das polymere thermoplastische Basismaterial zur Erzielung einer elektrischen Leitfähigkeit modifiziert werden. Dies wird dadurch erreicht, daß leitfähige Substanzen, wie z.B. Leitfähigkeitsruß, Graphit, Kohlenstoff-Fasern, elektronisch leitfähige Polymer-partikel oder Fasern (z.B. Polyanilin), Metallteilchen, Flocken oder Fasern oder metallisiertes Trägermaterial zugesetzt werden. Die Einarbeitung von leitfähigen Partikeln kann dabei auf verschiedene Art erfolgen:

1. Die leitfähigen Partikel werden in das aufgeschmolzene Polymer gegeben, wobei z.B. durch Kneten

oder durch Mischer nach der Dispergierung eine homogene Feinverteilung erreicht wird.

5 2. Die leitfähigen Partikel werden mit Hilfe von Rührern oder Mischern in das in einem Lösemittel gelöste thermoplastische System eingerührt und so lange nachdispergiert, bis die gewünschte Feinverteilung erreicht ist.

10 3. Die leitfähigen Partikel werden mit dem pulverförmigen Polymer ohne Aufschmelzen des Polymeranteils intensiv vermischt und anschließend heiß verpreßt. Hierbei erfolgt keine homogene Verteilung der leitfähigen Partikel in dem zu modifizierenden Material,
15 sondern die leitfähigen Partikel umhüllen die diskret vorliegenden Polymerpartikel.

Die Leitfähigkeit der Gemische hängt dabei außer von den Eigenschaften und der Zusammensetzung der Ausgangsprodukte (leitfähige Partikel), Polymer, auch
20 von den Verarbeitungsparametern ab. Im Falle eines Ruß-Polymer-Gemisches sind für die leitfähige Ausrüstung Rußkonzentrationen zwischen 5 und 70%, vorzugsweise zwischen 15 und 50% erforderlich. Die mechanischen Eigenschaften der modifizierten Produkte ver-
25 ändern sich dahingehend, daß Steifigkeit und Wärmeformbeständigkeit erhöht, Dehnung und Schlagzähigkeit herabgesetzt werden. Diese Änderungen sind für den Einsatz in der Polymer-Brennstoffzelle unkritisch, da
30 hauptsächlich gute Steifigkeit und Wärmeformbeständigkeit gefordert sind.

Die Gasverteilerringe können entweder aus unmodifizierte polymeren Grundmaterial oder aus elektrisch

leitfähigem Polymermaterial, wie vorstehend beschrieben, hergestellt werden.

5 Die Ionenaustauschermembran ist für den Protonen-transport zwischen der Wasserstoff- und Sauerstoff-
seite einer Einzelzelle zuständig, d.h. sie muß aus
kationenleitfähigem Material bestehen. Diese Fähig-
keit der Kationenleitung in wäßriger Umgebung wird in
10 einem Polymermaterial i.a. dadurch erreicht, daß auf
chemischem Weg Säuregruppierungen wie z.B. Carbonsäu-
ren, ($-\text{CO}_2\text{H}$), Sulfonsäuren ($-\text{SO}_3\text{H}$) oder Phosphonsäu-
ren ($-\text{PO}_3\text{H}_2$) eingeführt werden, die in wäßriger Umge-
bung in Ionen dissoziieren.

15 Typischerweise werden für diese hochionenleitfähigen
Membranen die stark sauren Sulfonsäuregruppen einge-
setzt. Die für die Polymer-Brennstoffzelle geeigneten
Grundmaterialien enthalten aromatische Ringsysteme,
an denen literaturbekannte Substitutionsreaktionen
20 unter Einführung von ionischen Gruppen durchgeführt
werden können. Geeignete Reagenzien zur Einführung
von Sulfonsäuregruppen sind beispielsweise Schwefel-
tri-oxid oder Chlorsulfonsäure. Der zum Erreichen
hoher Leitfähigkeiten benötigte Sulfonierungsgrad be-
25 wegt sich im Bereich 30 bis 200%, typischerweise im
Bereich zwischen 50 und 100%.

Die Membran kann in ihrer gesamten Fläche aus ionen-
leitendem Material bestehen (1-Komponenten-Membran).
30 Dieser Aufbau wird insbesondere dann gewählt werden,
wenn keine feste Verbindung zu anderen Komponenten
der Brennstoffzelle nötig ist. Die Membran kann des
weiteren aus 2 Materialien aufgebaut sein (2-Kompo-
nenten-Membran). Dabei besteht die Membran aus einer

inneren, ionenleitenden Fläche, die von einer äußeren, nicht ionenleitenden und aus dem Grundmaterial bestehenden Fläche umschlossen wird. Dies hat den Vorteil, daß im Fall einer flächigen Anbindung der Membran an den Gasverteilterring mittels Kleben oder Schweißen zwei völlig identische Materialien miteinander verbunden werden, was zu einer stabileren Verbindung der beiden Teile führt. Weiterhin verhindert man durch den Aufbau als 2-Komponenten-Membran die durch die hohe Quellung ionischer Polymere in Wasser hervorgerufene unerwünschte Längen- und Volumenänderungen des Randbereichs, da das nichtionische Grundmaterial nur unwesentlich in Wasser quillt. Die Herstellung dieses Membranaufbaus kann auf unterschiedliche Art und Weise erfolgen:

1.) Eine Folie aus dem unmodifizierten Grundmaterial, aus der dort ein Stück herausgestanzt ist, wo sich der ionenleitende Bereich befinden soll, wird auf einer Unterlage fixiert. Das ionenleitende Material wird in einem Lösemittel gelöst, in dem auch das unmodifizierte Material löslich ist. Die Lösung wird in die Aussparung der Folie gegossen, so daß die Ränder der Folie angelöst werden. Die Membranfolie wird anschließend bei Temperaturen im Bereich 20 - 250°C getrocknet und von der Unterlage entfernt.

2.) Eine Folie aus dem unmodifizierten Grundmaterial, aus der dort ein Stück herausgestanzt ist, wo sich der ionenleitende Bereich befinden soll, wird auf einer Unterlage fixiert. Ein Stück Folie aus dem ionenleitenden Material, welches genau die Form der Aussparung besitzt, wird in der Aussparung fixiert. Ein Klebstoffsystem verbindet die beiden Folien. Be-

vorzugt besteht das Klebstoffsystem aus einem Polymer, welches in einem Lösemittel gelöst ist, in dem sowohl das Grundmaterial als auch das ionenleitende Material löslich sind. Für die Polymerkomponente des Klebstoffsystems kommen hauptsächlich das unmodifizierte Grundmaterial selber, das ionenleitende Material oder Mischungen, Block- oder Pfropfcopolymere der beiden vorher genannten Stoffe in Frage.

3.) Eine Folie aus dem unmodifizierten Grundmaterial, aus der dort ein Stück herausgestanzt ist, wo sich der ionenleitende Bereich befinden soll, wird auf einer Unterlage fixiert. Anschließend wird eine Folie aus ionenleitendem Material über die Aussparung gelegt. Dabei ist die Fläche der ionenleitenden Folie etwas größer als die der Aussparung, so daß sich beide Folien teilweise überlappen. Die überlappenden Ränder können mit einem Klebstoffsystem verklebt werden, wie es im vorhergehenden Punkt beschrieben ist. Abschließend werden beide Folien unter Druck verschweißt, bis eine ebene Membranfolie resultiert. Dabei ist insbesondere darauf zu achten, daß die innere ionenleitende Fläche thermisch nur so weit belastet wird, daß keine Austauscherfunktionen zerstört werden. Im überlappenden Bereich dürfen die Austauscherfunktionen zerstört werden.

4.) Eine Folie aus dem unmodifizierten Grundmaterial, aus der dort ein Stück herausgestanzt ist, wo sich der ionenleitende Bereich befinden soll, wird auf einer Unterlage fixiert. Anschließend wird eine Folie aus ionenleitendem Material über die Aussparung gelegt. Dabei ist die Fläche der ionenleitenden Folie etwas größer als die der Aussparung, so daß sich bei-

de Folien teilweise überlappen. Die überlappenden Ränder können mit einem Klebstoffsystem verklebt werden, wie es im vorhergehenden Punkt beschrieben ist. Eine zweite Folie aus dem unmodifizierten Grundmaterial mit analogen Maßen wie die erste, wird auf das System aufgelegt, wobei ebenfalls eine Verklebung mit den überlappenden Bereichen der ionenleitenden Folie möglich ist. Abschließend werden die Folien unter Druck verschweißt, bis eine ebene Membranfläche entsteht. Auch hier ist darauf zu achten, daß die innere ionenleitende Fläche thermisch nur so weit belastet wird, daß keine Austauschfunktionen beschädigt werden. Im überlappenden Bereich dürfen die Austauschfunktionen zerstört werden.

Eine weitere Variante der 2-Komponenten-Membran sieht vor, daß die Membran zunächst in ihrer gesamten Fläche aus ionenleitendem Material hergestellt wird. Nachträglich wird der äußere Bereich der Membran modifiziert, so daß durch Abbau- und oder Vernetzungsreaktionen die hohe Wasserquellung stark reduziert wird. Die Nachbehandlung kann beispielsweise eine Temperaturbehandlung sein, wobei die Membran zwischen zwei heißen Platten auf Temperaturen oberhalb von 200°C erhitzt wird. Wichtig ist dabei, daß nur die äußeren Bereiche der Membran der hohen Temperatur ausgesetzt sind, so daß der mittlere Bereich der Membranoberfläche weiterhin ionisch leitend bleibt und als Festelektrolyt dienen kann.

Je nach Aufbau der Polymer-Brennstoffzelle kann eine unterschiedliche Größe der Membran gefordert sein. Eine Variante sieht vor, daß die Membran kleiner ist als der Gasverteilterring. Sie ist so groß, daß sie

noch teilweise mit ihm überlappt, sie aber nicht bis an die Bohrung für die Gas-/Wasserkanäle heranreicht. Eine zweite Variante sieht vor, daß die Membran die gleiche Größe hat wie der Gasverteillerring und selbst Bohrungen für Gas-/Wasserkanäle enthält.

Auch zur Herstellung der Stromverteilerstrukturen muß das polymere Basismaterial modifiziert werden. Im Brennstoffzellenstack liegt die Stromverteilerstruktur zwischen der bipolaren Platte und der mit Katalysator beschichteten Membran. Sie sorgt für eine über die Membranfläche gleichmäßige Stromzuleitung/-ableitung bzw. Gaszufuhr/-abfuhr. Das Material muß deshalb die Eigenschaften haben, gasdurchlässig und elektrisch leitend zu sein. Als Konstruktionswerkstoff sind herkömmliche Materialien, wie z.B. Netze oder Gewebe aus Metall oder Kohlefasern, poröse Metallsinterkörper oder poröse Kohlepapiere möglich. Ebenso können als Konstruktionswerkstoff leitfähige Polymermaterialien Verwendung finden, wobei das Material zur Erzielung der Gasdurchlässigkeit porös sein muß. Die Porosität kann beispielsweise durch vor der Verarbeitung des Konstruktionswerkstoffes zugegebene feingemahlene, in Wasser, Säuren oder Laugen lösliche anorganische Salze erreicht werden, die nachträglich herausgelöst werden und die poröse Struktur erzeugen.

Erfindungsgemäß wird nun vorgeschlagen, daß einzelne Bauteile untereinander durch ein Verbundverfahren, z.B. Verschweißen oder Verkleben, zusammengefügt werden. Dadurch ist es nun möglich, daß Brennstoffzellen, bzw. Brennstoffzellenstacks aufgebaut werden können, die entweder gar keine Dichtung oder nur sehr wenig Dichtungsmaterial benötigen.

Weitere Merkmale, Einzelheiten und Vorzüge der Erfindung ergeben sich aus der folgenden Beschreibung eines Ausführungsbeispiels der Erfindung sowie anhand der Figuren 1 - 7. Das Ausführungsbeispiel betrifft
5 einen Brennstoffzellenstack.

Hierbei zeigen:

10 Figur 1 den prinzipiellen Aufbau eines Wasserstoff-/Sauerstoff-Brennstoffzellenstacks des Standes der Technik.

15 Figur 2 einen herkömmlichen Brennstoffzellenstack im Bereich des Aufbaus "bipolare Platte Ionenaustauschermembran".

20 Figur 3 zeigt den erfindungsgemäßen Aufbau des Bereichs "bipolare Platte, Ionenaustauschermembran", wobei die Verteilereinheit aus zwei Einzelkomponenten besteht.

25 Figur 4 zeigt den erfindungsgemäßen Aufbau des Bereichs "bipolare Platte Ionenaustauschermembran", wobei die Verteilereinheit aus einer Komponente besteht.

Figur 5 zeigt den Gesamtaufbau einer polymeren Brennstoffzelle mit einem Dichtungsring.

30 Figur 6 zeigt den Gesamtaufbau einer Einzelzelle ohne Dichtungsringe.

Figur 7 zeigt den Aufbau des Kernbereichs eines Brennstoffzellenstacks mittels der Bauteile C.

Figur 1 zeigt den prinzipiellen Aufbau eines Wasserstoff-/Sauerstoff-Brennstoffzellenstacks wie er aus dem Stand der Technik bekannt ist. Die für die Konstruktion des Stacks einer Wasserstoff-/Sauerstoff-Brennstoffzelle wichtigen Einzelbauteile bestehen für
5 eine Zelleneinheit üblicherweise aus einer bipolaren Platte 1, dem Gasverteillerring 2, der Ionenaustauschermembrane 4, und den Stromverteilerstrukturen 3. Auf die Darstellung der Katalysatorbeschichtung der
10 Membran wird in dieser wie in den folgenden Figuren aus Übersichtsgründen verzichtet, da sie für die folgende Beschreibung nicht wesentlich ist.
15

Der in Figur 1 wiedergegebene prinzipielle Aufbau zeigt dabei den Kernbereich des Brennstoffzellenstacks. Dieser Kernbereich ist dann noch von entsprechenden positiven bzw. negativen Endplatten begrenzt.
20 Um die Dichtigkeit der einzelnen Bauteile gegeneinander zu gewährleisten, sind Dichtungen 5 vorgesehen. Die Dichtungen 5 sind dabei jeweils zwischen der bipolaren Platte 1 und dem Gasverteillerring 2 sowie
25 zwischen dem Gasverteillerring 2 und der Membran 4 angeordnet. Die Brennstoffzelle wird dann anschließend durch Druck zusammengepreßt.

Wie bereits bei der Schilderung des Standes der Technik ausgeführt, bringt die Verwendung von Dichtungsmaterialien gravierende Nachteile mit sich. Durch die mechanische Deformierbarkeit des Dichtungsmaterials kommt es einerseits zu Veränderungen der geometrischen Lage einzelner Bauteile zueinander, anderer-
30

seits tritt durch eine Dauerbelastung des Dichtungsmaterials bei erhöhten Temperaturen eine Versprödung bzw. Degradation ein.

5 Figur 2 zeigt nun den prinzipiellen Aufbau des Bereichs "bipolare Platte Ionenaustauschermembran" bei einem herkömmlichen Brennstoffzellenstack. Zwischen der bipolaren Platte 1 und dem Ionenaustauschermembran 4 sind zwei Dichtungsringe 5, der Gasverteiler-
10 ring 2 sowie die Stromverteilerstrukturen 3 angeordnet. Wesentlich dabei ist, daß die Ionenaustauschermembran 4 in den Bereichen A und B auf Flächen aufliegt, von denen nicht sichergestellt ist, daß sie in einer Ebene liegen. Im Bereich A liegt die Membran 4
15 auf einem fixen Untergrund, wohingegen im Bereich B die Dicke des Blockes (Dichtung-Verteilerringdichtung) je nach Anpreßdruck und Bauteiltoleranzen veränderlich ist. Deshalb bildet sich beim Übergang vom Bereich A zu B eine Höhendifferenz in der Auflagefläche der Membrane aus, die zu scharfen Knicken und
20 potentiellen Bruchstellen in der Membran führt.

Figur 3 zeigt nun die erfindungsgemäße Lösung für den Bereich "bipolare Platte Ionenaustauschermembran".
25 Die erfindungsgemäße Polymer-Brennstoffzelle umgeht das anhand von Figur 2 geschilderte Problem, in dem die bipolare Platte 1 und der Gasverteiler-
ring 2 aus dem gleichen polymeren Grundmaterial bestehen und dabei miteinander verschweißt oder verklebt werden
30 können. Mit dieser Konstruktion kann man nun sicherstellen, daß der Membranuntergrund in den Bereichen A und B immer in einer Ebene liegt, so daß keine gefährlichen Materialknicke entstehen können. Auf die Verwendung von Dichtungen in diesem Bereich kann so-

mit verzichtet werden. Dabei kann die Membrane 4 mit dem Gasverteillerring 2 verklebt oder verschweißt werden.

5 Ein derartiges Verbundverfahren ist aber nicht notwendigerweise gefordert, sondern die erfindungsgemäße Lösung kann auch verwirklicht werden, in dem beide Bauteile durch Druckanwendung zusammengepreßt werden.

10 Eine alternative Lösung für den Aufbau des Bereichs "bipolare Platte Ionenaustauschermembran" ist in Figur 4 wiedergegeben. Anstelle der verklebten oder verschweißten Kombination aus bipolarer Platte 1 und Gasverteillerring 2 kann ein aus einem Stück gefertigte Verteilereinheit 6 verwendet werden.

Der Gesamtaufbau einer Einzelzelle für einen Stack mit einem Dichtungsring 5 geht aus Figur 5 hervor. Nach Figur 5 ist für jede Zellhälfte die jeweilige bipolare Platte 1 mit dem jeweiligen Gasverteillerring 2 verschweißt oder verklebt und bildet die sogenannte Verteilereinheit. Die Stromverteilerstruktur 3 kann dabei ebenfalls mit der bipolaren Platte 1 verschweißt oder verklebt sein, sofern das gewählte Material der Stromverteilerstruktur 3 eine entsprechende Verarbeitung zuläßt. Erfindungsgemäß wird dieser Aufbau dabei als Halbzelle bezeichnet.

30 Auf einer Halbzelle wird nun die Membran 4 fixiert, wobei sie mit dem Gasverteillerring 2 verschweißt oder verklebt sein kann, aber nicht notwendigerweise sein muß. Die Membran 4 ist dabei in ihrem Durchmesser so bemessen, daß sie, vom Mittelpunkt aus betrachtet, etwas über den Anfang des Gasverteillerrings 2 hinaus-

reicht, aber noch deutlich von den Bohrungen 7 für die Gas-/Wasserkänäle endet. Die Anbindung der beiden Halbzellen erfolgt mit einem Dichtungsring 5. Der Dichtungsring 5 enthält Bohrungen 7 für die Gas-/Wasserkänäle und bedeckt sowohl das Ende der Membran 4 als auch den Gasverteillerring 2, so daß eine Abdichtung der Halbzellen gegeneinander und eine Abdichtung der Halbzellen gegen die Gas-/Wasserkänäle gegeben ist. Die Membran 4 basiert auf dem thermoplastischen Grundmaterial und kann entweder nur aus ionenleitenden Materialien oder aber aus einer Kombination von nichtionenleitendem und ionenleitendem Grundmaterial, wie vorstehend beschrieben, bestehen. Alternativ kann gemäß anstelle der verklebten oder verschweißen Kombination aus bipolarer Platte 1 und Gasverteillerring 2 ein aus einem Stück gefertigte Verteilereinheit 6 verwendet werden.

Der Aufbau einer einfachen Brennstoffzelle erfolgt analog. Statt der Ausgestaltung der Stromableiter 1 als bipolare Platte wird eine Endplatte verwendet. Die Brennstoffzelle wird dann aus zwei derartigen Halbzellen, d.h. aus einer Halbzelle mit einer positiven Endplatte und einer Halbzelle mit einer negativen Endplatte aufgebaut (nicht abgebildet). Der Verbund mit der Membrane 4 erfolgt wie vorstehend für die Einzelzelle des Stacks beschrieben.

Figur 6 zeigt den Gesamtaufbau einer erfindungsgemäßen Einzelzelle ohne Dichtungsringe. Nach Figur 6 ist für jede Halbzelle die jeweilige bipolare Platte 1 mit dem jeweiligen Gasverteillerring 2 verschweißt oder verklebt und bildet die sogenannte Verteilereinheit. Die Stromableiterstruktur 3 kann ebenfalls mit

der bipolaren Platte 1 verschweißt oder verklebt sein, sofern das gewählte Material der Stromverteilerstruktur eine entsprechende Verarbeitung zuläßt. Die Membran 4 hat in diesem Fall den gleichen Durchmesser wie die Gasverteillerringe 2 und enthält die Bohrungen 7 für die Gas-/Wasserkanäle. Die Membran 4 wird auf beiden Seiten mit dem Gasverteillerring 2 der jeweiligen Halbzelle verschweißt oder verklebt. Die Membran 4 basiert erfindungsgemäß auf dem thermoplastischen Grundmaterial und kann entweder nur aus ionenleitendem Material oder aber aus einer Kombination von nichtionenleitendem und ionenleitendem Grundmaterial, wie vorstehend beschrieben, bestehen. Auch bei dieser Ausführungsform kann alternativ statt der Kombination aus bipolarer Platte 1 und Gasverteillerring 2 ein aus einem Stück gefertigte Verteilereinheit 6 verwendet werden.

Wie bereits bei der Figurenbeschreibung der Figur 5 erläutert, kann eine Einzelzelle analog unter Verwendung von positiven und negativen Endplatten ohne Dichtung aufgebaut werden. Statt der jeweiligen bipolaren Platte 1 wird dann eine positive bzw. negative Endplatte verwendet.

Ein Brennstoffzellenstack (Figur 7) ist nun aus mehreren dieser Einzelzellen aufgebaut. Der Kernbereich des Brennstoffzellenstacks ist dabei in der Art aufgebaut, daß beidseitig einer bipolaren Elektrode 1 jeweils in Richtung des Inneren der Einzelzellen hin ein Stromverteiler 3 und ein Gasverteillerring 2 wie vorstehend beschrieben, angeordnet ist. Diese Baueinheit wird erfindungsgemäß als Bauteil C bezeichnet. Der Kernbereich wird nun aus n dieser Bauteile C ge-

bildet, wobei diese n-Bauteile C wiederum über Membrane 4 verbunden sind. In Figur 7 ist zur besseren Übersichtlichkeit zwischen der Membrane 4 und dem Bauteil C ein freier Raum vorhanden. Im fertigen Brennstoffzellenstack ist selbstverständlicherweise die Membrane 4 dann wie vorstehend beschrieben, mit der Baueinheit C verbunden. Der Kernbereich des Brennstoffzellenstacks kann dabei wie vorstehend bei den einzelnen Zellen schon beschrieben, wieder alternativ aus einer Verteilereinheit 6 aus einer Einheit aufgebaut sein. Selbstverständlich ist auch ein Aufbau einer erfindungsgemäßen Zelle möglich, bei der jeweils zwischen der Membrane 4 und der Baueinheit C ein einzelnder Dichtungsring vorgesehen ist, analog Figur 5.

Bevorzugterweise werden zum Aufbau einer kompletten Brennstoffzelle 2 - 300 Bauteile C verwendet. Die komplette Brennstoffzelle wird dann von einer positiven und auf der gegenüberliegenden Seite von einer negativen Endplatte, die wiederum über verschweißte oder verklebte Membran mit der Kerneinheit verbunden sind, gebildet.

Ein abschließender dauerhafter Zusammenhalt der einzelnen Bauteile der Brennstoffzelle bzw. des Brennstoffzellenstacks ist notwendig, um einen guten Kontakt der mit Katalysator beschichteten Membranseiten mit den Stromverteilerstrukturen zu gewährleisten und um die Zelldichtigkeit zu garantieren. Ein dauerhafter Zusammenhalt der Bauteile kann dadurch erreicht werden, daß die Konstruktion durch abschließende Verschraubung oder ähnliche mechanische Maßnahmen unter Druck zusammengefügt wird. Ebenso ist es möglich,

durch abschließendes Verschweißen/Verkleben der einzelnen Verteilereinheiten miteinander den Zusammenhalt zu gewährleisten. Hierbei können Hilfsstoffe zur Verwendung kommen, wie beispielsweise Folien/Platten aus unmodifiziertem polymerem Grundmaterial, welche zur Herstellung der dauerhaften Verbindung um die zu verbindenden Verteilereinheiten gelegt und mit ihnen verschweißt/verklebt werden.

Erfindungsgemäß ist vorgesehen, daß die einzelnen Bauteile oder wie vorstehend beschrieben, die fertige Brennstoffzelle durch ein Verbundverfahren zusammengehalten werden. Das Konzept, alle Komponenten der Brennstoffzelle aus dem gleichen Grundmaterial aufzubauen, ermöglicht nun ein stabiles Verbinden z.B. durch Verkleben oder Verschweißen, da keinerlei Unverträglichkeiten bzw. Entmischungen zu erwarten sind, wie sie bei den Einzelbauteilen der Brennstoffzellen des Standes der Technik die Regel sind.

Erfindungsgemäß wird als Verbundverfahren bevorzugt Verschweißen oder Verkleben angewandt.

Unter Kunststoffschweißen wird erfindungsgemäß das Vereinigen von thermoplastischen Kunststoffen unter Anwendung von Wärme und Kraft ohne oder mit Schweißzusatz verstanden.

Hierzu müssen die Fügeteiloberflächen in den plastischen Zustand gebracht werden. Prinzipiell kann die Anbindung der Bauteile mit einem der nachfolgend beschriebenen Verfahren erfolgen, wobei die unterschiedlichen Schweißverfahren danach eingeteilt werden, auf welchem Weg die Fügeteiloberflächen in den

plastischen Zustand überführt werden. Insbesondere kommen folgende Schweißverfahren in Betracht:

5 1.) Heizelementschweißen: Die Fügeflächen werden durch vorwiegend elektrisch beheizte metallische Bauelemente erwärmt. Die Wärme kann direkt vom Heizelement zu den Fügeflächen fließen (direktes Heizelementschweißen) oder sie kann durch ein Fügeteil hindurch zu den Fügeflächen fließen (indirektes
10 Heizelementschweißen).

2.) Ultraschallschweißen: Die Plastifizierung der Oberflächen erfolgt durch die Einspeisung von Ultraschall. Das Ultraschallschweißen beruht auf dem
15 mechanischen Dämpfungsvermögen des Polymers. Die mechanische Dämpfung ist bei nahezu allen Kunststoffen so groß, daß die Schweißbarkeit nach dem Ultraschallverfahren gegeben ist.

20 Andere Schweißverfahren sind prinzipiell möglich (Warmgasschweißen, Reibschweißen oder Hochfrequenzschweißen), eignen sich aber nicht für alle Kunststoffmaterialien oder Formtypen. Vom Polyethersulfon ist bekannt, daß das Material mittels Wärme- oder
25 Ultraschallschweißen bearbeitbar ist.

Bevorzugt ist als weiteres Verbundverfahren das Verbinden durch Kleber.

30 Die Haftfestigkeit einer Klebeverbindung wird durch Adhäsion und Kohäsion beeinflusst, wobei unter Adhäsion die Bindungskräfte an den Grenzflächen zwischen den zu klebenden Körpern und dem Klebstoff und unter Kohäsion die Bindungskräfte im Klebstoff selber ver-

standen werden. Prinzipiell sind alle Klebstoffarten zur Verbindung der Komponenten der Polymerbrennstoffzelle denkbar, wie Lösungsmittelklebstoffe, Dispersionsklebstoffe, Schmelzklebstoffe, Kontaktklebstoffe, Polymerisations-, Polyadditions- und Polykondensationsklebstoffe.

Insbesondere werden jedoch aufgrund der Löslichkeit der Komponenten der Polymer-Brennstoffzelle Lösungsmittelklebstoffe verwendet. Als Lösemittelkomponenten des Klebstoffsystems kommen solche in Frage, in denen beide Fügeteile löslich sind. Das Lösemittel diffundiert zum Teil in die Fügeteile ein, so daß die Wechselwirkungen zwischen Klebstoff und Fügeteil begünstigt werden (gute Adhäsion).

Im Fall des Polyethersulfons als polymerem Grundmaterial und des sulfonierten Polyethersulfons als ionenleitendem Material kann beispielsweise Dimethylformamid verwendet werden. Als Polymerkomponente im Klebstoffsystem dient entweder das polymere Grundmaterial selber, das modifizierte ionenleitende Grundmaterial, Gemische aus beiden oder Copolymere, insbesondere Block- und Pfropfcopolymere. Im Fall der Verklebung zweier Flächen aus polymerem Grundmaterial wird vornehmlich dieses Material auch Bestandteil des Klebstoffsystems sein, da dann auf jeden Fall aufgrund der Mischbarkeit der Polymerkomponenten von Klebstoff und Fügeteilen eine dauerhafte Verbindung realisiert werden kann (gute Adhäsion). Da die Polymerkomponente im Klebstoff aus dem gleichen Material ist wie die Fügeteile selbst, ist gleichfalls eine gute Kohäsion gegeben. Copolymere als Klebstoffkomponente finden insbesondere dann Anwendung, wenn nicht exakt gleiche

5 Materialien verklebt werden sollen, wie z.B. ionenleitendes und nicht ionenleitendes Material. Pfropf- und Blockcopolymere können dann zu einer festen Anbindung der im allgemeinen nicht mischbaren Materialien beim Verkleben beisteuern, da beide Materialien in den Block- bzw. Pfropfcopolymeren durch chemische Bindung auf molekularer Ebene verknüpft sind.

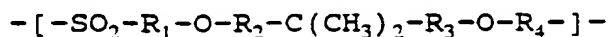
10 Ebenfalls möglich ist das Fügen mit reinen Lösemit-
teln ohne Polymerzusatz, welches auch als Quellschweißen bezeichnet wird.

15 Im Fall des Verklebens zweier leitfähiger Stücke kann es nötig werden, daß die oben erläuterte Zusammensetzung des Klebstoffs durch die Zugabe leitfähiger Partikel erweitert wird, um die elektrische Leitfähigkeit der Verklebung zu gewährleisten.

5 Patentansprüche

1. Brennstoffzelle mit Stromableiter, polymeren
Festelektrolyten in Form von Membranen, Gasverteiler-
erringen und Stromverteiler als Bauteile, dadurch ge-
kennzeichnet, daß alle Bauteile aus einem thermopla-
stischen, in einem Lösungsmittel löslichen, Grundpo-
lymer gefertigt sind und daß dieses Grundpolymer für
die einzelnen Bauteile so modifiziert ist, daß die
Stromableiter (1) elektrisch leitfähig, die Membrane
(4) ionenleitfähig, die Stromverteiler (3) gasdurch-
lässig und elektrisch leitfähig und die Gasverteiler-
ringe (2) aus nichtmodifiziertem und/oder elektrisch
leitfähigem Grundpolymer sind, und daß die Bauteile
ohne Dichtungen durch ein Verbundverfahren zusammen-
gefügt sind.

2. Brennstoffzelle nach Anspruch 1, dadurch gekenn-
zeichnet, daß das thermoplastische Grundpolymer ein
Homopolymer ist, das aus Monomereinheiten, die aus
der Gruppe der Polysulfone der allgemeinen Formel I

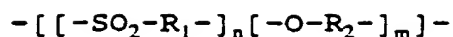


(I)

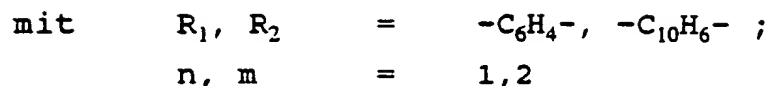
mit $R_1, R_2, R_3, R_4 = -C_6H_4-, -C_{10}H_6-$

ausgewählt sind, aufgebaut ist.

3. Brennstoffzelle nach Anspruch 1, dadurch gekenn-
zeichnet, daß das thermoplastische Grundpolymer ein
Homopolymer ist, das aus Monomereinheiten, die aus
der Gruppe der Polyethersulfone der allgemeinen For-
mel II



(II)

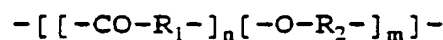


5

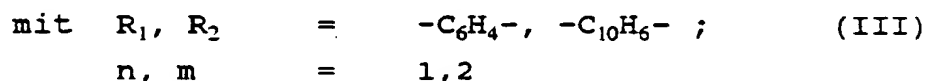
ausgewählt sind, aufgebaut ist.

4. Brennstoffzelle nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß das thermoplastische Grundpolymer ein Homopolymer ist, das aus Monomereinheiten, die aus der Gruppe der Polyetherketone der allgemeinen Formel III

10



15

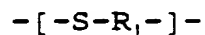


ausgewählt sind, aufgebaut ist.

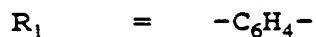
20

5. Brennstoffzelle nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß das thermoplastische Grundpolymer ein Homopolymer ist, das aus Monomereinheiten, die aus Polyphenylensulfide der allgemeinen Formel IV

25



(IV)



30

ausgewählt sind, aufgebaut ist.

6. Brennstoffzelle nach Anspruch 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, daß das thermoplastische Grundpolymer ein Copolymer aus den Monomereinheiten nach Anspruch

2 bis 5 ist.

5 7. Brennstoffzelle nach Anspruch 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß sie aus einer ersten Halbzelle, bestehend aus einem ersten Stromableiter, einem Gasverteilerring und einem Stromverteiler besteht, die ohne Dichtung über eine Elektrodenmembran mit einer zweiten Halbzelle, bestehend aus einem zweiten Stromverteiler, einem zweiten Gasverteilerring und einem
10 zweiten Stromableiter verbunden ist.

15 8. Brennstoffzelle nach Anspruch 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß sie in Form eines Brennstoffzellenstapels aufgebaut ist, in der Art, daß beidseitig eines bipolaren Stromableiters (1) jeweils in Richtung des Inneren der Einzelzellen, ein Stromverteiler (3) und ein Gasverteilerring (2) angeordnet ist (Bauteil C), wobei n-Bauteile C jeweils über Membrane (4) zusammengefügt sind und daß diese n-Bauteile C
20 von Halbzellen A nach Anspruch 7, begrenzt sind und, daß die Halbzellen jeweils wieder über Membrane (4) mit den n-Bauteilen C verbunden sind, wobei n im Bereich von 2 bis 300 liegt.

25 9. Brennstoffzelle nach Anspruch 1 bis 8, dadurch gekennzeichnet, daß die Verbindung der Halbzellen oder der Baueinheit C mit der bzw. den Membranen über eine Dichtung (5) erfolgt.

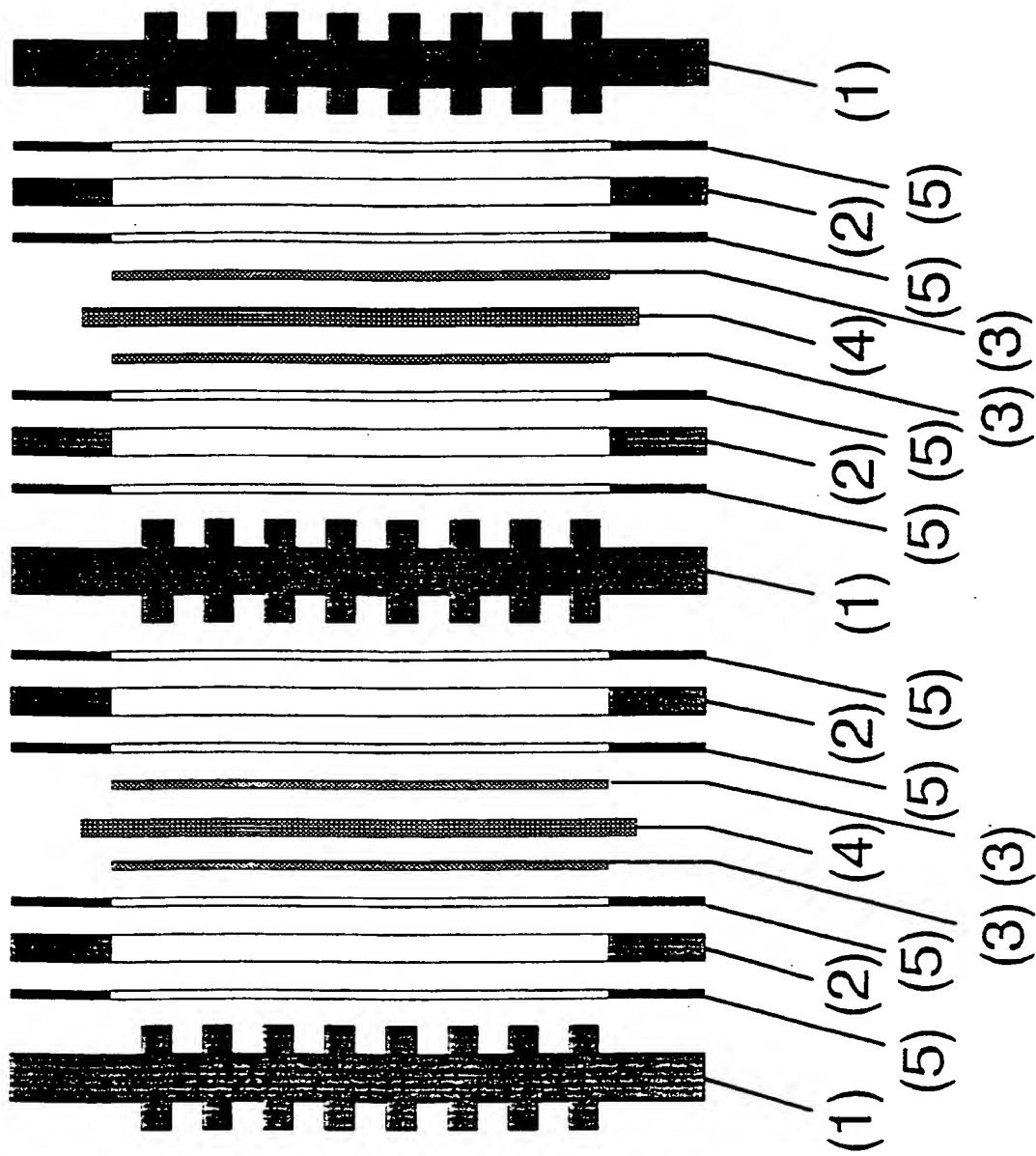
30 10. Brennstoffzelle nach Anspruch 1 bis 9, dadurch gekennzeichnet, daß der Stromableiter (1) mit dem jeweiligen Gasverteilerring (2) durch Verkleben oder Verschweißen zusammengefügt wird und eine Verteilereinheit (6) bildet.

11. Brennstoffzelle nach Anspruch 10, dadurch gekennzeichnet, daß die Verteilereinheit (6) einstückig ist und mittels eines geeigneten Verfahrens zur Verarbeitung thermoplastischer Polymere, wie beispielsweise Spritzgießen oder Pressen, aus modifiziertem polymerem Grundmaterial, das elektrisch leitfähig ist, hergestellt ist.

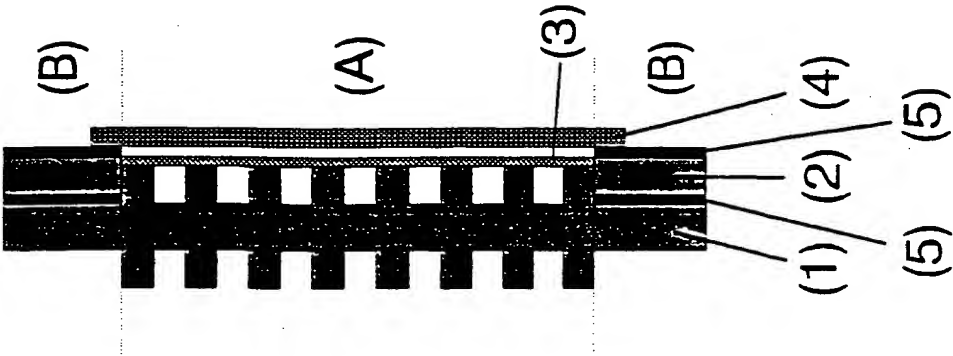
12. Brennstoffzelle nach Anspruch 1 bis 11, dadurch gekennzeichnet, daß der Stromverteiler (3) mit der Verteilereinheit (6) durch Verschweißen oder Verkleben zusammengefügt ist.

13. Brennstoffzelle nach Anspruch 1 bis 12, dadurch gekennzeichnet, daß die einzelnen Bauteile der Brennstoffzelle durch geeignete Maßnahmen unter Druck gehalten sind.

14. Brennstoffzelle nach Anspruch 13, dadurch gekennzeichnet, daß die einzelnen Bauteile durch Verschrauben unter Druck gehalten sind.

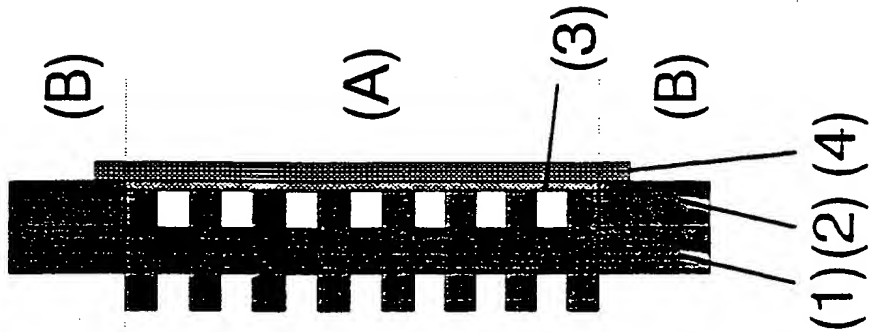


Figur 1

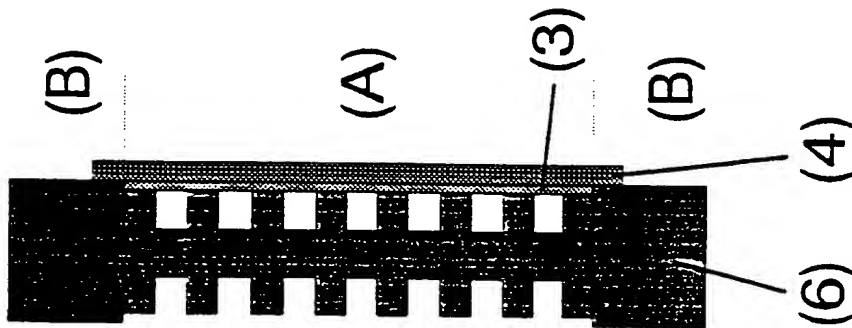


Figur 2

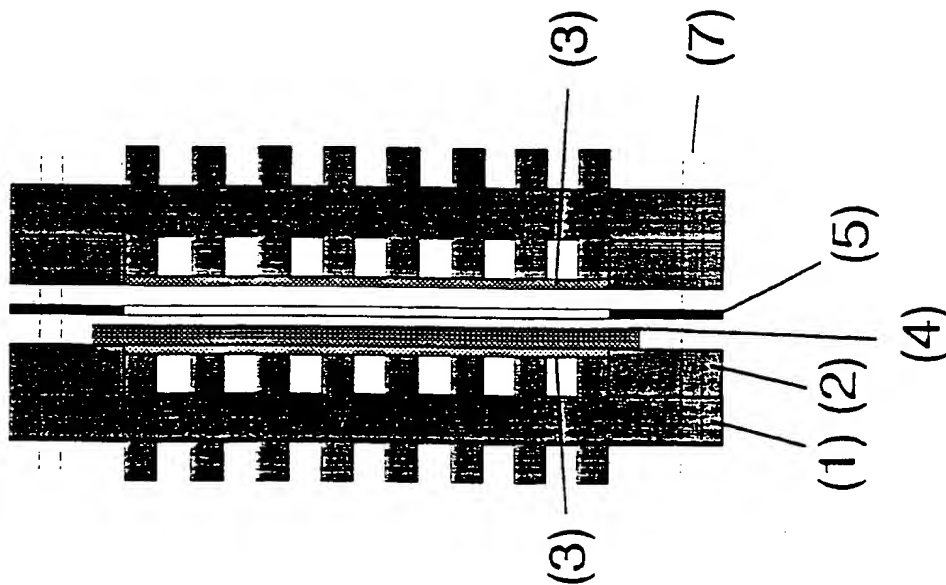
ERSATZBLATT



Figur 3

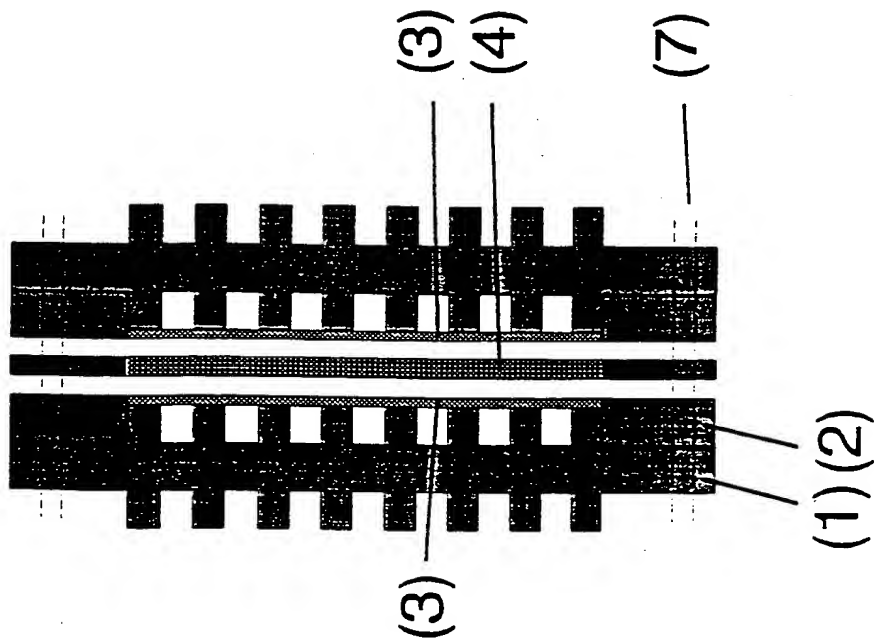


Figur 4



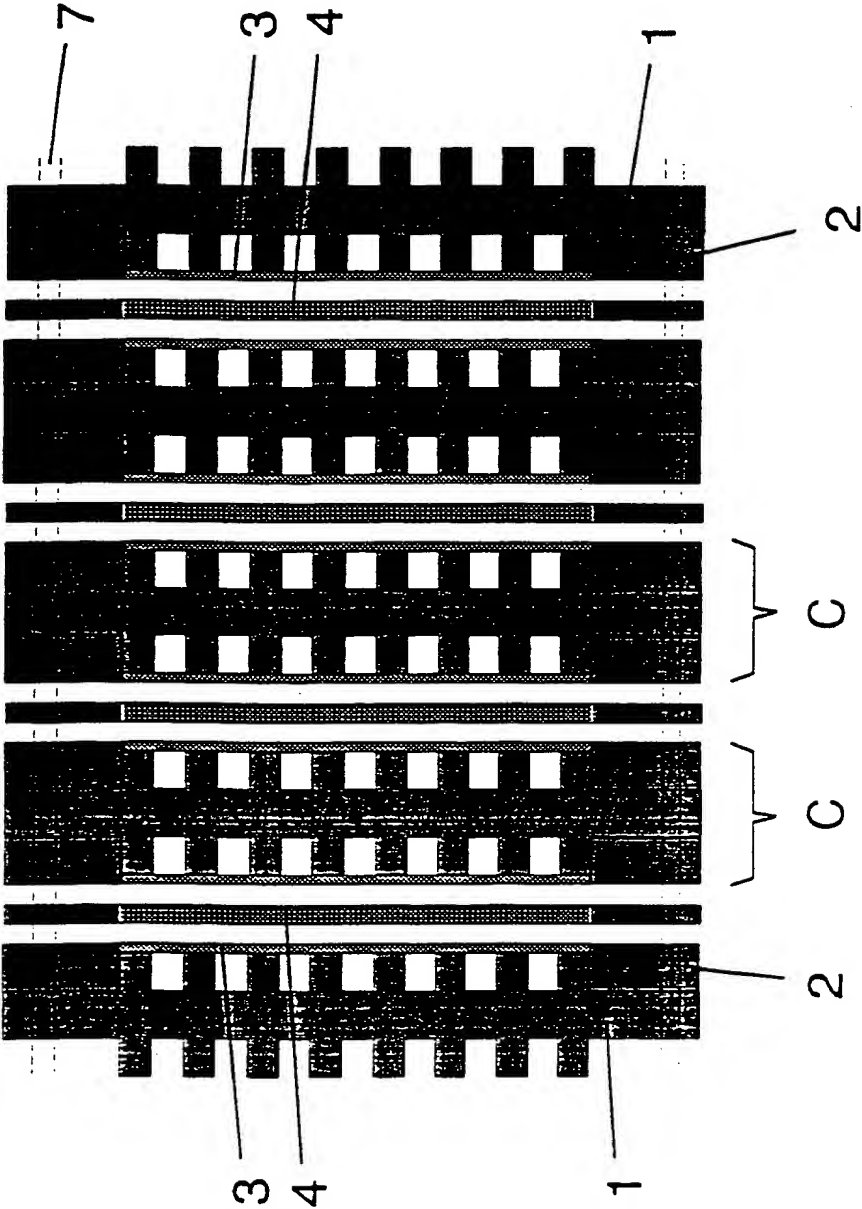
Figur 5

ERSATZBLATT



Figur 6

ERSATZBLATT



Figur 7

ERSATZBLATT

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/DE 94/00458

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
IPC 5 H01M8/24

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 5 H01M

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	EXTENDED ABSTRACTS, vol.87, no.2, 18 October 1987, PRINCETON, NEW JERSEY US pages 250 - 251 W. HERTWIG 'NEW APPROACH TO A LOW TEMPERATURE SOLID STATE FUEL CELL' see page 250, left column, paragraph 4 -paragraph 5; figure 1 see page 250, left column, paragraph 8 -paragraph 9 see page 250, right column, paragraph 3 -paragraph 9	1,7,8, 10-12
Y	---	2
Y	AT,B,389 020 (SCHÜTZ PETER DIPL. ING. DR) 10 October 1989 see page 7, line 1 - line 11; claims 5,12,16,18; figure 5 ---	2
	--- -/--	

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.☒ Patent family members are listed in annex.

* Special categories of cited documents :

- 'A' document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- 'E' earlier document but published on or after the international filing date
- 'L' document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- 'O' document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- 'P' document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

17 August 1994

Date of mailing of the international search report

23. 8. 94

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+ 31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax (+ 31-70) 340-3016

Authorized officer

D'hondt, J

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No
PCT/DE 94/00458

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	US,A,5 176 966 (DANNY G. EPP ET AL) 5 January 1993 see column 5, line 56 - line 61; figures 1,2 ---	13,14
A	NL,A,8 702 138 (ELECTROCHEMISCHE ENERGIECONVERSIE N. V.) 3 April 1989 see claim 4 ---	3-6
A	GB,A,2 178 223 (INTERNATIONAL FUEL CELL CORPORATION) 4 February 1987 see page 2, line 2 - line 9; claim 1 see page 2, line 54 - page 3, line 22 -----	3,5,6

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 94/00458

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
AT-B-389020	10-10-89	NONE	
US-A-5176966	05-01-93	NONE	
NL-A-8702138	03-04-89	NONE	
GB-A-2178223	04-02-87	DE-A- 3623854	29-01-87
		FR-A- 2585188	23-01-87
		NL-A- 8601748	16-02-87

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES
IPK 5 H01M8/24

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)
IPK 5 H01M

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	EXTENDED ABSTRACTS, Bd.87, Nr.2, 18. Oktober 1987, PRINCETON, NEW JERSEY US Seiten 250 - 251 W. HERTWIG 'NEW APPROACH TO A LOW TEMPERATURE SOLID STATE FUEL CELL' siehe Seite 250, linke Spalte, Absatz 4 -Absatz 5; Abbildung 1 siehe Seite 250, linke Spalte, Absatz 8 -Absatz 9 siehe Seite 250, rechte Spalte, Absatz 3 -Absatz 9	1,7,8, 10-12
Y	---	2
Y	AT,B,389 020 (SCHÜTZ PETER DIPL. ING. DR) 10. Oktober 1989 siehe Seite 7, Zeile 1 - Zeile 11; Ansprüche 5,12,16,18; Abbildung 5 ---	2
	--- -/--	

☒ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒ Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung, die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung, die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

17. August 1994

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

23. 08. 94

Name und Postanschrift der Internationale Recherchenbehörde
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+ 31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax (+ 31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

D'hondt, J

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	US,A,5 176 966 (DANNY G. EPP ET AL) 5. Januar 1993 siehe Spalte 5, Zeile 56 - Zeile 61; Abbildungen 1,2 ---	13,14
A	NL,A,8 702 138 (ELECTROCHEMISCHE ENERGIECONVERSIE N. V.) 3. April 1989 siehe Anspruch 4 ---	3-6
A	GB,A,2 178 223 (INTERNATIONAL FUEL CELL CORPORATION) 4. Februar 1987 siehe Seite 2, Zeile 2 - Zeile 9; Anspruch 1 siehe Seite 2, Zeile 54 - Seite 3, Zeile 22 -----	3,5,6

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die derselben Patentfamilie gehören

Inventar des Aktenzeichens

PCT/DE 94/00458

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
AT-B-389020	10-10-89	KEINE	
US-A-5176966	05-01-93	KEINE	
NL-A-8702138	03-04-89	KEINE	
GB-A-2178223	04-02-87	DE-A- 3623854	29-01-87
		FR-A- 2585188	23-01-87
		NL-A- 8601748	16-02-87

THIS PAGE BLANK (USPTO)